



TITLE:

液体金属による熱中性子散乱(「液体金属の構造と物性」,物性研研究会報告)

AUTHOR(S):

中原, 康明

---

CITATION:

中原, 康明. 液体金属による熱中性子散乱(「液体金属の構造と物性」,物性研研究会報告). 物性研究 1970, 15(2): 85-93

ISSUE DATE:

1970-11-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/88179>

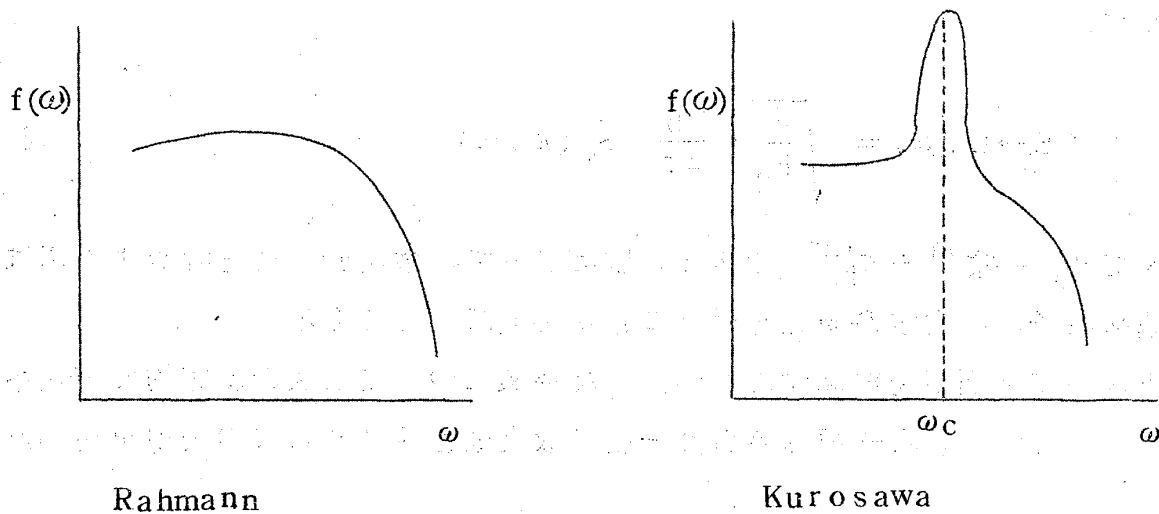
RIGHT:

6. R.kubo. Rep. Prog. Phys. 29. 255 (1966).

○コメント (中島)

黒沢氏のコメントの紹介

Sears の model で計算すると, 特定振動数のため, Rahman の図に合わなくなってくる。



## 液体金属による熱中性子散乱

原研 中 原 康 明

### § 1. 序

我々原子炉物理をやっている者が物性的な研究を行うのは次のような目的意識に基いている。原子炉の特性を明らかにするには先ず原子炉内部における中性子の振舞いを詳細に解析することが必要である。中性子の熱化を支配するのは中性子減速材と中性子との相互作用, 物理量としては中性子微分散乱断面積である。中性子熱化現象を解明するにはこの微分散乱断面積の定量的に精度の良い数値が必要となってくる。一方, 散乱断面積は動的構造因子  $S(\kappa, \omega)$  及びその自己成分  $S_s(\kappa, \omega)$  から次式によって求められる

ことは良く知られている。

$$\sigma(E_0 \rightarrow E, \mu) = \sqrt{\frac{E}{E_0}} \left[ \sigma_b^{\text{coh}} S(\kappa, \omega) + \sigma_b^{\text{inc}} S_s(\kappa, \omega) \right] \quad (1)$$

こゝで、 $E_0$ 、 $E$ はそれぞれ入射及び反射中性子のエネルギー、 $\mu$ は散乱角の余弦、 $\sigma_b^{\text{coh}}$ 、 $\sigma_b^{\text{inc}}$ はそれぞれ束縛原子干渉及び非干渉散乱断面積、 $\hbar\kappa$ は運動量変化、 $\hbar\omega$ はエネルギー変化である。非干渉散乱近似では(1)は簡単に書けて、

$$\sigma(E_0 \rightarrow E, \mu) = \sqrt{\frac{E}{E_0}} \frac{\sigma_b}{4\pi} S_s(\kappa, \omega) \quad (2)$$

こゝで  $\sigma_b = \sigma_b^{\text{coh}} + \sigma_b^{\text{inc}}$  である。したがって、散乱断面積を計算するには減速材原子の動力学の研究を行うことが必要になってくる。

正攻法で断面積を計算するのが困難な物質については次の便宜的な方法が用いられている。原子炉関係者は一般に散乱則と呼ばれる次の表現を用いる。

$$S(\alpha, \beta) = T e^{\beta/2} S(\kappa, \omega) \quad (3)$$

こゝで  $\alpha$ 、 $\beta$ は次式で定義される無元量で、 $T$  (eV単位)は物質の温度、 $M$ は物質の質量である。

$$\alpha = \frac{\kappa^2}{2MT}, \quad \beta = \frac{\omega}{T}$$

こゝでは eV 単位を用いている。この散乱則の値が中性子回折による測定で  $\alpha$  と  $\beta$  のかなり広い範囲にわたって得られている場合には速度自己相関関数のスペクトル密度として定義される一般化された振動数分布  $f(\omega)$ 、すなわち、

$$\frac{\langle v(t)v(0) \rangle}{\langle v^2 \rangle} = \int_0^\infty f(\omega) \cos(\omega t) d\omega \quad (4)$$

で定義される  $f(\omega)$  は  $S_s(\alpha, \beta)$  から次の外挿操作の繰返し ( $S_s \rightarrow f \rightarrow S_s$  (計算)  $\rightarrow f \rightarrow S_s \rightarrow$  測定値に最も良く合う  $f$  を定める) によって決めることができる。<sup>1)</sup>

$$f(\omega) = 2\beta \sinh\left(\frac{\beta}{2}\right) \lim_{\alpha \rightarrow 0} \frac{S_s(\alpha, \beta)}{\alpha} \quad (5)$$

我々の目的は原子炉で冷却材として用いられる液体ナトリウムの散乱断面積を計算することであるが、液体金属による熱中性子散乱の理論はまだ発表されていない。以下で紹介する我々の計算は液体金属系解析の手がかりを作ろうという試みである。

## § 2. 液体金属の動的構造因子

簡単のために液体金属を系全体としては中性であるが、完全に電離したイオンと電子の2成分系と考え、基礎方程式には次の連立古典Vlasov方程式を用いる。ただし、イオン-イオン、電子-電子、イオン-電子間ポテンシャルの $r$ 依存性は同一であると仮定して、 $U_{II}(r) = (Ze)^2 \phi(r)$ 、 $U_{ee}(r) = e^2 \phi(r)$ 、 $U_{Ie}(r) = -Ze^2 \phi(r)$ としている。

$$\begin{aligned} & \frac{\partial}{\partial t} F(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) + \mathbf{v} \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} F(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \\ & - \frac{(Ze)^2}{M} N_0 \int \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \phi(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) F(\mathbf{r}', \mathbf{v}', t) d\mathbf{r}' d\mathbf{v}' \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{v}} F(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \\ & + \frac{Ze^2}{M} n_0 \int \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \phi(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) f(\mathbf{r}', \mathbf{v}', t) d\mathbf{r}' d\mathbf{v}' \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{v}} F(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \\ & = 0, \end{aligned} \quad (6)$$

$$\begin{aligned} & \frac{\partial}{\partial t} f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) + \mathbf{v} \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \\ & - \frac{e^2}{m} n_0 \int \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \phi(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) f(\mathbf{r}', \mathbf{v}', t) d\mathbf{r}' d\mathbf{v}' \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{v}} f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \\ & + \frac{Ze^2}{m} N_0 \int \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \phi(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) F(\mathbf{r}', \mathbf{v}', t) d\mathbf{r}' d\mathbf{v}' \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{v}} f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t) \\ & = 0 \end{aligned} \quad (7)$$

ここで  $F$ ,  $f$  及び  $N_0, n_0$  はそれぞれイオンと電子の分布関数及び平均密度である。  $F = F_0(v) + F^{(1)}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$ ,  $f = f_0 + f^{(1)}(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$  とおいて, (6)と(7)を線型化する。初期条件を次のようにとる。  $S(\kappa)$  及び  $s(\kappa)$  はそれぞれイオンと電子に対する静的構造因子である。

$$F^{(1)}(\kappa, \mathbf{v}, 0) = F_0(v) S(\kappa), \quad f^{(1)}(\kappa, \mathbf{v}, 0) = f_0(v) s(\kappa).$$

(6)と(7)を Fourier - Laplace 変換し,  $\mathbf{v}$  について積分すると,  $F^{(1)}(\kappa, p)$  についての2元連立方程式が得られ,  $F^{(1)}(\kappa, p)$  から  $S(\kappa, \omega)$  は次の関係を用いて求められる<sup>2)</sup>。

$$S(\kappa, \omega) = 2\text{Re} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} F^{(1)}(\kappa, i\omega + \epsilon). \quad (8)$$

$\kappa$  と  $p$  はそれぞれ Fourier 及び Laplace 変換の変数で, 等方物質では  $S(\kappa, \omega)$  は  $\kappa$  の方向に依存せず,  $\kappa = |\kappa|$  のみの関数となる。すなわち,

$$F^{(1)}(\kappa, p) = \frac{G(\kappa, p) d(\kappa, p) + (n_0/N_0 Z) [D(\kappa, p) - 1] g(\kappa, p)}{D(\kappa, p) + d(\kappa, p) - 1} \quad (9)$$

ここで

$$D(\kappa, p) = 1 - i 2\pi^2 \Omega_p^2 \kappa \phi(\kappa) \cdot \int \frac{\partial F_0(v) / \partial \mathbf{v}}{p + i\kappa \cdot \mathbf{v}} d\mathbf{v},$$

$$G(\kappa, p) = \int \frac{F^{(1)}(\kappa, \mathbf{v}, 0)}{p + i\kappa \cdot \mathbf{v}} d\mathbf{v}$$

であり,  $d$  と  $g$  は  $D$  と  $G$  の式で  $\Omega_p$  を  $\omega_p$ ,  $F_0$  を  $f_0$ ,  $F^{(1)}$  を  $f^{(1)}$  で置き換えればよい。 $\Omega_p$  と  $\omega_p$  はそれぞれイオンと電子のプラズマ振動数である。

Nelkin - Ranganathan の中性原子モデル<sup>2)</sup>を適用すると  $F^{(1)}(\kappa, p)$  は簡単に次のように書ける。

$$F^{(1)}(\kappa, p) = G(\kappa, p) / D_{\text{eff}}(\kappa, p) \quad (10)$$

ここで

$$D_{\text{eff}}(\kappa, p) = 1 - i (2\pi)^3 N_0 \kappa \cdot \mathbf{V}(\kappa) \int \frac{\partial F_0(v) / \partial \mathbf{v}}{p + i\kappa \cdot \mathbf{v}} d\mathbf{v}$$

ここで  $MV(\kappa)$  は Percus-Zwanzig の実効ポテンシャルである。

(8)と(9)または(10)から  $S(\kappa, \omega)$  を計算することができる。

ポテンシャル  $\phi(\kappa)$  の型を決めなければならないが、 $\phi(\kappa)$  は 2 次の sum rule

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} F^{(1)}(\kappa, 0) = -\frac{1}{2} \frac{T}{M}$$

を満たすように決める。すなわち、

$$\phi(\kappa) = \phi_{pz}(\kappa) \left[ 1 - \frac{1}{Z} \frac{s(\kappa)}{S(\kappa)} \right]^{-1} \quad (11)$$

ここで  $\phi_{pz}(\kappa) = [(2\pi)^3 (Ze)^2]^{-1} MV(\kappa)$  である。電子の存在を無視する、すなわち、 $s(\kappa) \equiv 0$  とすると、 $\phi = \phi_{pz}$  となる。

結局静的構造因子  $S(\kappa)$  と  $s(\kappa)$  が分かれば、 $S(\kappa, \omega)$  は計算できることになる。古典モデルにおいては  $F_0(v)$  と  $f_0(v)$  は Maxwellian であるとし、 $S(\kappa)$  は Ascroft-Lekner の式<sup>3)</sup>から計算し、電子に対しては  $s(\kappa) \equiv 1$  とする。

今迄電子も古典的なマックスウエル粒子として取扱ってきたが、電子の量子効果を評価するために電子に対して量子論的な Vlasov 方程式 (Balescu 方程式)<sup>4)</sup> を適用してみた。この場合  $F^{(1)}(\kappa, p)$  の形は(9)と全く同じであるが、 $d(\kappa, p)$  が次のようになる。

$$d(\kappa, p) = 1 - i \frac{8\pi^3 e^2 n_0}{\hbar} \phi(\kappa) \int \frac{f_0(\mathbf{v} + \frac{\hbar \mathbf{k}}{2m}) - f_0(\mathbf{v} - \frac{\hbar \mathbf{k}}{2m})}{p + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{v}} d\mathbf{v} \quad (12)$$

そして電子に対する静的構造因子には Hartree - Fock 近似による式<sup>5)</sup>を適用した。

定量的な議論をするには更に  $S_s(\kappa, \omega)$  を計算することが必要であるが、Vlasov モデルでは粒子の拡散については自由であるとしているので、1 粒子拡散モードの寄与が重要な  $S_s$  の計算には適していない。適当な衝突項を入れれば良いわけであるが、そのような方程式は事実上解くことができない。そこでこの困難を避けるために次のような便宜的な方法を用いる。

序でも述べたように  $S_s$  は  $f(\omega)$  から求められるので、拡散モードに対しては実効巾モデル<sup>1)</sup>を適用し、全体の  $f(\omega)$  から実効巾モデルの分布を引いた残りの成分に対しては Bravais 格子の調和振動モードに対する計算法を適用

する。このように一度分割した後で全体の  $S_s$  は各モードに対するものから convolution によって求める。

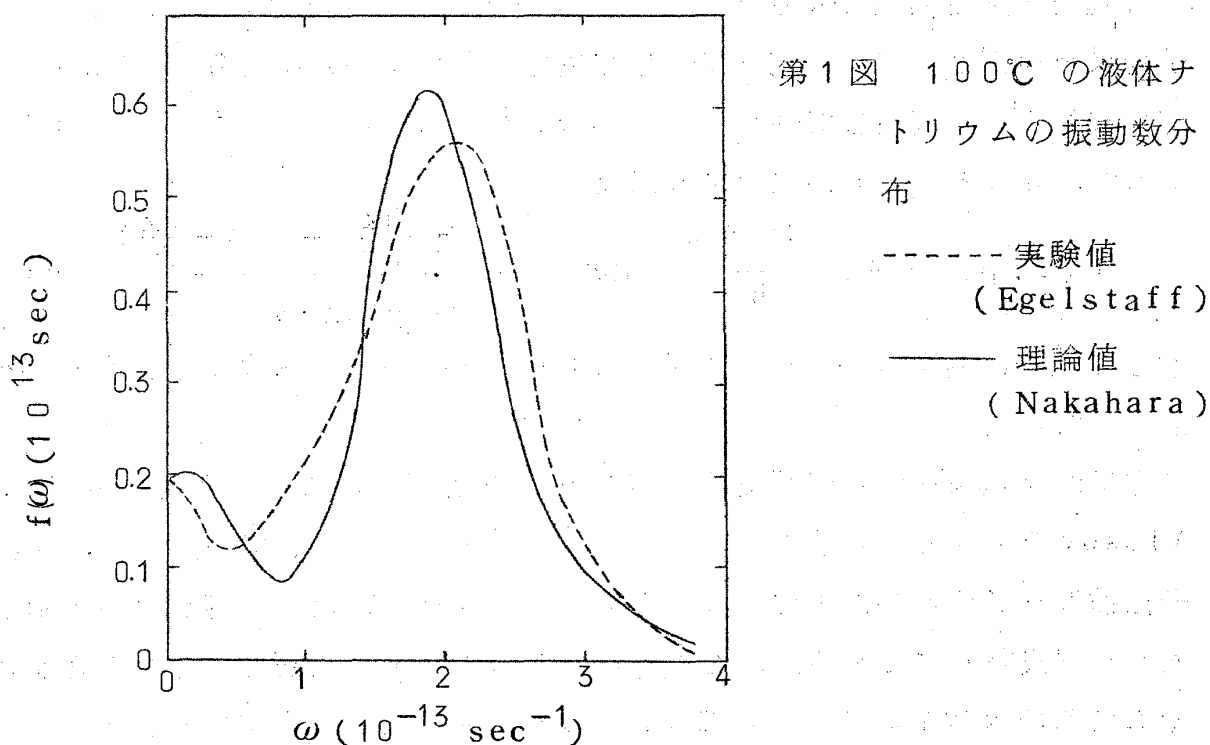
### § 3. 液体ナトリウムの散乱断面積

§ 2 で述べた方法を用いて液体ナトリウムの散乱断面積の計算を行った。液体ナトリウムの散乱断面積の測定は Randolph が精力的に行っており<sup>6)</sup> データを次式で定義される  $S_R(\kappa, \beta)$  の形で表にまとめられている。

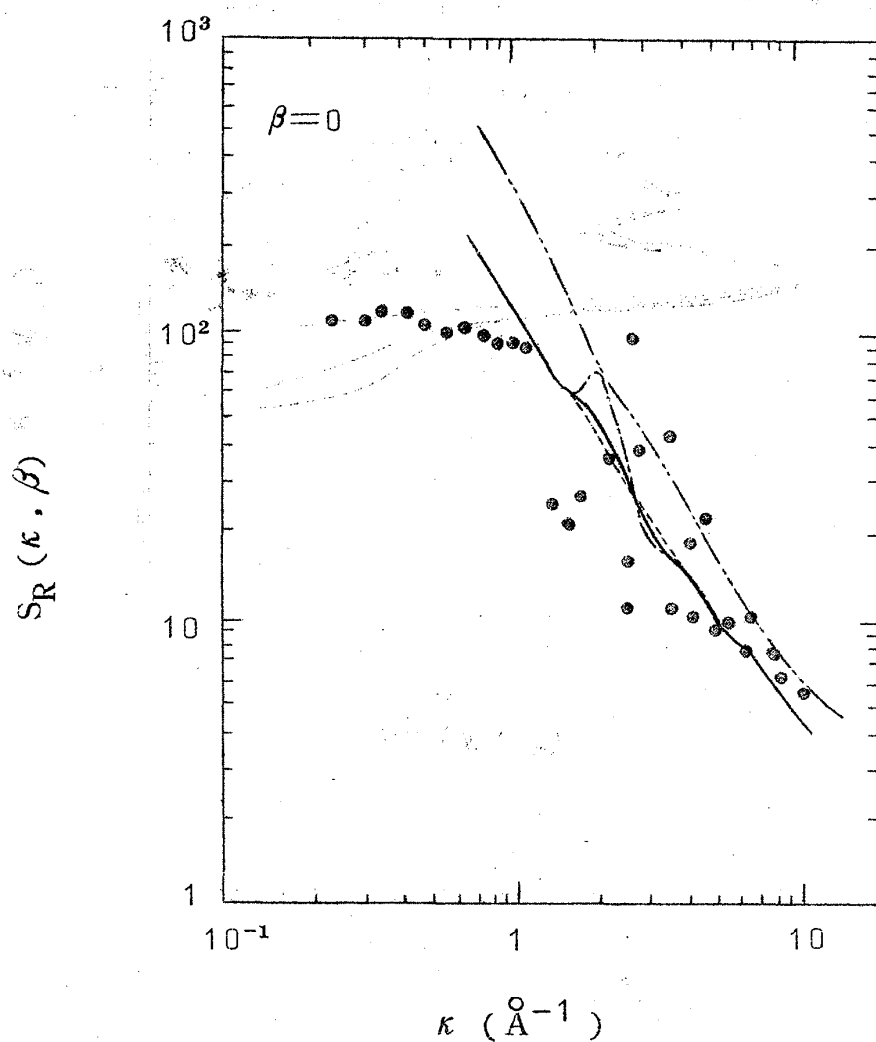
$$S_R(\kappa, \beta) = \frac{\sigma_b^{\text{coh}}}{4\pi} e^{\beta/2} S(\kappa, \omega) + \frac{\sigma_b^{\text{inc}}}{4\pi} e^{\beta/2} S_s(\kappa, \omega). \quad (13)$$

ナトリウムに対しては  $\sigma_b^{\text{coh}} = 1.55 \text{ barns}$ ,  $\sigma_b^{\text{inc}} = 1.85 \text{ barns}$  である<sup>7)</sup>。

第1図に示したのは  $S_s(\kappa, \omega)$  の計算に用いた  $100^\circ\text{C}$  の液体ナトリウムの振動数分布である。第2図にはいろいろな近似で計算した  $S_R(\kappa, \beta)$  の



第 1 図

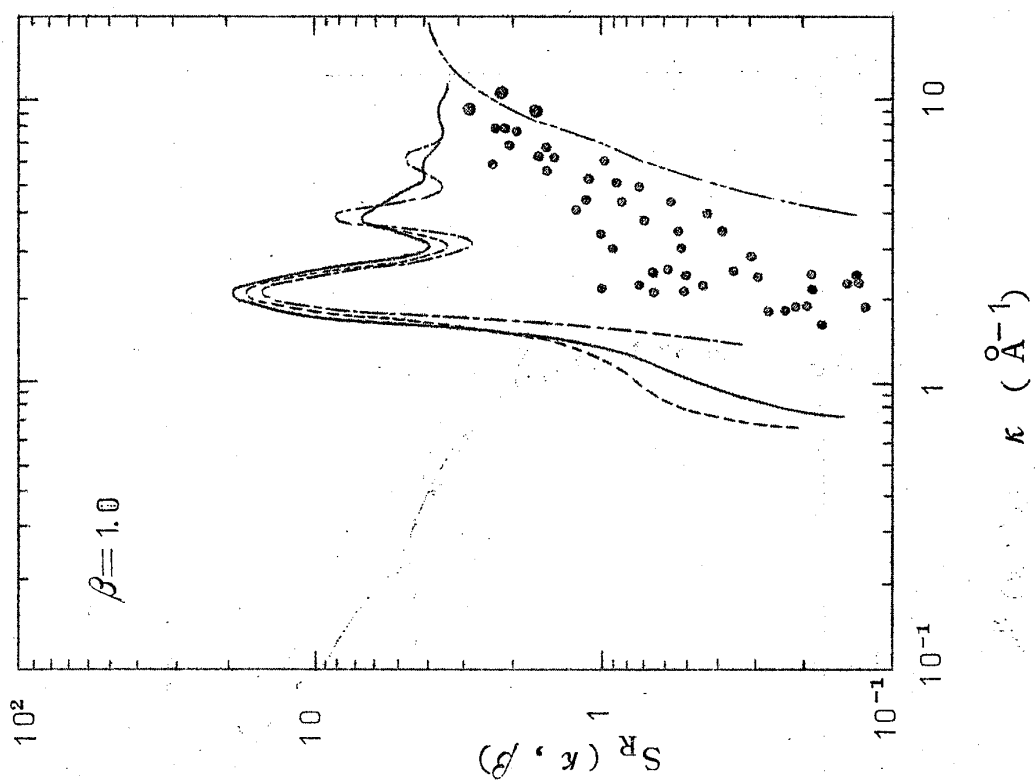


第2図 a

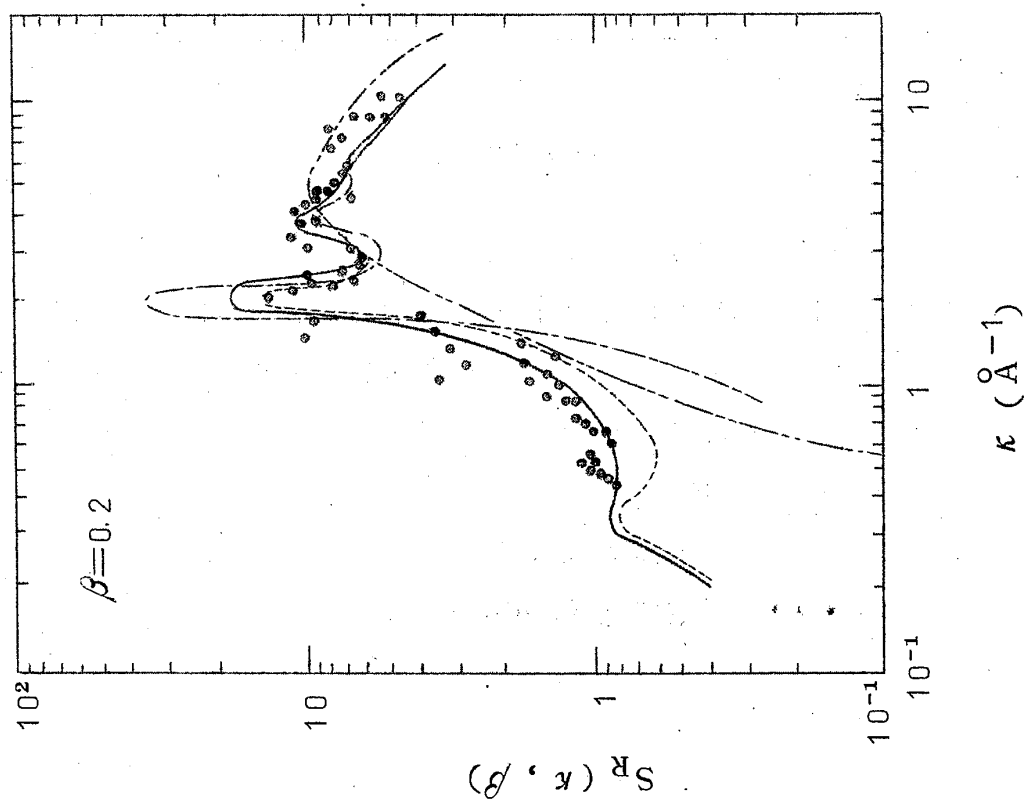
第2図 100°C の液体ナトリウムの熱中性子散乱断面積

- 電子の量子効果を考慮した場合
- 古典モデル
- · - · - 中性原子モデル
- 非干渉散乱近似
- ● ● ● 測定値 (Randolph)





第 2 図 c



第 2 図 b

値を実験値といくつかの $\beta$ の値に対して比較して示した。イオン間ポテンシャルとしてクーロン・ポテンシャルと実効ポテンシャルを用いた場合  $S_R(\kappa, \beta)$  ではほとんどその違いはみられない。電荷を陽に考慮した場合と Nelkin-Ranganathan の中性古典液体に対する Vlasov モデルを液体ナトリウムに適用した場合とではかなり顕著な違いが  $S(\kappa, \omega)$  にあらわれる。第2図のbを見れば分るように中性モデルによる  $S_R$  は  $\kappa \simeq 2 \text{ \AA}^{-1}$  のピークより  $\kappa$  の減少と共に急激に落込んでしまう。電子の量子効果は Balescu 方程式を用いて評価した限りでは  $S(\kappa, \omega)$  を計算する上ではあまり重要ではない。

残された問題で一番重要なのは液体金属中のイオンの拡散運動の取扱いである。拡散に対しては自由ガスの扱いをする Vlasov モデルの不完全さが  $\kappa$  と  $\beta$  の小さい領域における  $S_R$  の理論値と実験値と大きなずれとなっており、エネルギー変化分  $\omega$  がイオンの熱運動エネルギーと同程度 ( $\beta \sim 1$ ) の場合にも我々の取扱いは不十分であることが第2図から分る。このエネルギー領域は多体相互作用下での1体運動の様子が重要なかわり合いを持ち、イオン・クラスターとしての取扱いによって理論を改良することがであろう。

#### 文 献

- 1) P.A.Egelstaff and p. Schofield ; Nucl.Sci. Eng., 12, 260 (1962)
- 2) M.Nelkin and S. Ranganathan ; Phys.Rev., 164, 222 (1967)
- 3) N.W.Aschcroft and J.Lekner; Phys.Rev., 145, 83 (1966) .
- 4) R.Balescu; "Statistical Mechanics of Charged Particles" Interscience Publ.
- 5) D.Pines; "Elementary Excitations in Solids". W.A.Benjamin. Inc.
- 6) P.D.Randolph; IN-1199 (1968) .
- 7) V.F.Turchin ; "Slow Neutrons " Israel program for Scientific Translations Ltd. (1965) .